

JP2002151023A

Publication Title:

FLAT TYPE BATTERY

Abstract:

Abstract of JP 2002151023

(A) Translate this text **PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a flat type battery superior in the reliability, packaged by a light-weighted and thin-walled battery sheath body wherein a short circuit between a reed terminal and the sheath body in an electrode terminal seal part can be reduced. **SOLUTION:** In the flat type battery in which an electrode laminated body is housed in the sheath body consisting of a laminated film composed of a metallic foil and a heat-fusible resin layer, an insulating resin layer composed of 4-methyl-1-pentene based resin as the main component is installed between a reed terminal and the metallic foil of the sheath body laminated film of the seal part to heat seal the reed terminal, and a short circuit is prevented.

Courtesy of <http://v3.espacenet.com>

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-151023
(P2002-151023A)

(43)公開日 平成14年5月24日(2002.5.24)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
H 0 1 M 2/08		H 0 1 M 2/08	K 5 H 0 1 1
2/02		2/02	K 5 H 0 2 9
10/40		10/40	Z

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 9 頁)

(21)出願番号 特願2000-348223(P2000-348223)

(22)出願日 平成12年11月15日(2000.11.15)

(71)出願人 000000033

旭化成株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

(72)発明者 杉山 潤

神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号

旭化成工業株式会社内

(72)発明者 山下 昌哉

神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号

旭化成工業株式会社内

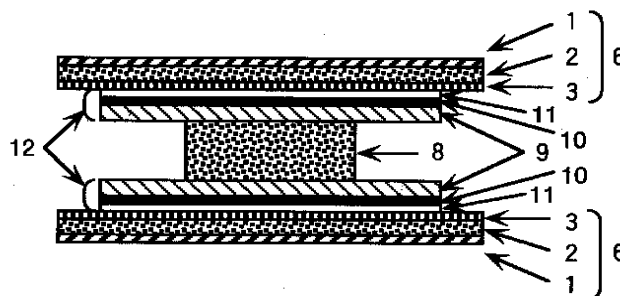
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 扁平型電池

(57)【要約】

【課題】 電極端子シール部におけるリード端子と外装体との短絡を低減できる、軽量、薄肉の電池外装体でパッケージされた信頼性に優れた扁平型電池を提供する。

【解決手段】 金属箔と熱融着性樹脂層とからなる積層フィルムで構成される外装体に、電極積層体が収容されてなる扁平型電池において、リード端子を熱シールするシール部の、リード端子と外装体積層フィルムの金属箔との間に、主成分が4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなる絶縁性樹脂層を設け、短絡を防止することを特徴とする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 外装体、外装体内部に封入されるイオン移動媒体、正極活物質層を含む正極、負極活物質層を含む負極を包含し、正極、負極は、正極活物質層及び負極活物質層がイオン移動媒体層を介して互に対向するように積層配置された電極積層体を構成して、外装体内部にイオン移動媒体と共に収容されている電池において、外装体は、少なくとも金属箔と熱融着性樹脂層とからなる積層フィルムであって、電極積層体が包み覆い密閉されるように外装体周辺部がシールされ、正極と負極に接続された金属製リード端子が各々外装体外部に取り出され、且つリード端子をもシールされた構造であり、外装体の少なくともリード端子シール部分には、金属箔と熱融着性樹脂層との間に、4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなる絶縁性樹脂層が配設されて熱シールされていることを特徴とする扁平型電池。

【請求項2】 外装体の少なくともリード端子シール部分には、熱融着性樹脂層として接着性樹脂(A)層が配置されており、接着性樹脂(A)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と酸変性ポリオレフィン系樹脂とを含む組成物からなることを特徴とする、請求項1記載の扁平型電池。

【請求項3】 外装体、外装体内部に封入されるイオン移動媒体、正極活物質層を含む正極、負極活物質層を含む負極を包含し、正極、負極は、正極活物質層及び負極活物質層がイオン移動媒体層を介して互に対向するように積層配置された電極積層体を構成して、外装体内部にイオン移動媒体と共に収容されている電池において、外装体は、少なくとも金属箔と熱融着性樹脂層とからなる積層フィルムであって、電極積層体が包み覆い密閉されるように外装体周辺部がシールされ、正極と負極に接続された金属製リード端子が各々外装体外部に取り出され、且つリード端子をもシールされた構造であり、リード端子の周縁部に設けるシール材が、接着性樹脂(A)層／絶縁性樹脂層／接着性樹脂(B)層の少なくとも3層構成からなり、接着性樹脂(A)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と酸変性ポリオレフィン系樹脂とを含む組成物からなり、絶縁性樹脂は4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなり、接着性樹脂(B)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と α -オレフィン系重合体とを含む組成物からなり、リード端子側に接着性樹脂(A)層の面を、外装体の熱融着性樹脂層側に接着性樹脂(B)層の面を配置し、熱シールされていることを特徴とする非水系電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電子機器の電源等を使用される電池に関するものであり、より詳細には正極、負極、イオン移動媒体などが金属箔と樹脂フィルムを積層した積層フィルム材よりなる外装体内部に封入さ

れ、正極と負極のリード端子を各々外部に取り出す構造を有する扁平型電池に関する。

【0002】

【従来の技術】近年の電子機器の小型化、軽量化、薄型化の進歩は目覚ましいものがあり、携帯電話、パソコン、電子手帳、電子スチルカメラ、などの電源となる電池についても、より軽量化、薄肉化のニーズが高まってきている。これらの要求に対し、従来の電池は、鉄などの金属板をプレス加工して作る円筒型、角型、ボタン型の容器内に発電要素を密閉したものであり、軽量、薄型の電池をつくるには適していない。このため、金属缶の代わりにアルミ箔など金属箔と樹脂フィルムとの積層フィルムを外装体として用いた扁平型電池の開発が進められている。

【0003】この扁平型電池はシール方法が、従来の電池のかしめ、レーザー溶接、あるいはハーメチックシールではなく、高分子材料を用いた熱シールを行うので電池の密閉化が容易であり、シール部の厚みを薄くすることも可能になるという特徴を有する。またこの様な外装体に高分子積層フィルムを用いた扁平型電池は、正極および負極の集電体に接続された金属製リード端子を、それぞれ袋状外装体の外に取り出す構造を有しており、外装体の内側熱融着性樹脂層に挟みこんだ状態で熱シールする。

【0004】ところが従来は、このリード端子取り出し部における外装体熱シールの過程で、外装体積層フィルムの金属箔と金属製リード端子の接触が起こり短絡するという問題があった。この短絡を避けるべく、これまでいくつかの提案がなされており、例えば特開昭61-82662号公報では外装体金属箔の代わりに、絶縁性の無機質皮膜を蒸着したもの、あるいは他のバリアー性樹脂層(特開平6-124692号公報、特開平9-77884号公報)を用いたものなどが提案されていた。しかしこれらは何れも水蒸気バリアー性が十分でなく、そのため電池性能が経日とともに低下する問題があった。

【0005】また特開平9-265974号公報には、外装体の熱シール温度で溶融しない絶縁層として、リード端子部にエチレンビニルアルコール樹脂層を設けることが開示されている。しかしエチレンビニルアルコール樹脂は融点があり高くないので、これを溶融させないように、シール温度を低く設定する必要がある、外装体の熱融着性樹脂層として比較的耐熱性の低い材料を選択せざるを得ないという制約が発生する。またエチレンビニルアルコール樹脂はケン化度が低いと、電解液によって膨潤するなどの問題点も懸念される。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、このような従来の問題点を解決するようになされたもので、金属箔と熱融着性樹脂層の積層フィルムからなる電池外装体を使用した電池において、電極リード端子と外装体金属箔

との熱シール時における接触短絡を防止すると共に、高温保存下でのシール剥がれの無い密閉信頼性の高い扁平型電池を提供するものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記課題について種々検討し、リード端子と外装体金属箔の間にシール温度では溶融しない耐熱絶縁性樹脂層として、235℃の融点をもつ4-メチル-1-ペンテン樹脂を主成分とする4-メチル-1-ペンテン系樹脂層を設け、またさらに必要であれば、リード端子側に酸変性オレフィン系樹脂層を設けることにより、密閉信頼性が高く充放電サイクル性の優れた電池を得ることを見出し、本発明を完成した。

【0008】以下、本発明の詳細を説明する。本発明は、その電池外装体が例えばアルミニウムなどの金属箔と熱融着性樹脂層とを重ね合わせた積層フィルムからなり、袋状の外装体内部に正極、負極、イオン移動媒体などの発電要素を収容し、密閉シールされる。そのとき正極および負極集電体に接続されたおのおののリード端子が外装体最内層の熱融着性樹脂層の間を経て外装体の外部に取り出される構造をとり、外装体外周部がリード端子を挟む状態で密閉シールされる。

【0009】第1の発明は、外装体、外装体内部に封入されるイオン移動媒体、正極活物質層を含む正極、負極活物質層を含む負極を包含し、正極、負極は、正極活物質層及び負極活物質層がイオン移動媒体層を介して互いに対向するように積層配置された電極積層体を構成して、外装体内部にイオン移動媒体と共に収容されている電池において、外装体は、少なくとも金属箔と熱融着性樹脂層とからなる積層フィルムであって、電極積層体が包み覆い密閉されるように外装体周辺部がシールされ、正極と負極に接続された金属製リード端子が各々外装体外部に取り出され、且つリード端子をもシールされた構造であり、外装体の少なくともリード端子シール部分には、リード端子と外装体金属箔との間に、4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなる絶縁性樹脂層が配設されて熱シールされていることを特徴とする扁平型電池である。

【0010】第2の発明は、外装体の少なくともリード端子シール部分には、リード端子と接する部分に接着性樹脂(A)層が配置されており、接着性樹脂(A)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と酸変性ポリオレフィン系樹脂との組成物からなることを特徴とする、請求項1記載の扁平型電池である。第3の発明は、外装体、外装体内部に封入されるイオン移動媒体、正極活物質層を含む正極、負極活物質層を含む負極を包含し、正極、負極は、正極活物質層及び負極活物質層がイオン移動媒体層を介して互いに対向するように積層配置された電極積層体を構成して、外装体内部にイオン移動媒体と共に収容されている電池において、外装体は、少なくとも金属

箔と熱融着性樹脂層とからなる積層フィルムであって、電極積層体が包み覆い密閉されるように外装体周辺部がシールされ、正極と負極に接続された金属製リード端子が各々外装体外部に取り出され、且つリード端子をもシールされた構造であり、リード端子の周縁部に設けるシール材が、接着性樹脂(A)層/絶縁性樹脂層/接着性樹脂(B)層の少なくとも3層構成からなり、接着性樹脂(A)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と酸変性ポリオレフィン系樹脂とを含む組成物からなり、絶縁性樹脂は4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなり、接着性樹脂(B)は、4-メチル-1-ペンテン系樹脂と α -オレフィン系重合体とを含む組成物からなり、リード端子側に接着性樹脂(A)層の面を、外装体の熱融着性樹脂層側に接着性樹脂(B)層の面を配置し、熱シールされていることを特徴とする扁平型電池である。

【0011】電池外装体となる積層フィルムは、例えば、熱融着性樹脂層、バリアー層、外層となるフィルムの3層からなり、それらを重ね合わせる積層方法は通常ラミネート法が用いられる。ラミネートはドライラミネート法、押し出しラミネート法のどちらでも構わないが、そのときに用いられるラミネート剤は耐電解液性のものが好ましい。熱融着性樹脂層としては、耐電解液性の観点から、通常オレフィン系樹脂が使用され、中でもポリエチレン、ポリプロピレンが好ましく利用される。ポリプロピレン系としては、ホモ、コポリマーあるいは、酸変性ポリプロピレンなどがある。

【0012】バリアー層としては、金属箔が用いられアルミニウムまたはアルミニウム合金であることが軽量、且つ加工性に優れることから好ましい。外層としては、2軸延伸ポリエステル、ナイロンなどの厚さ12~50 μ m程度のものが好適に使用される。本発明において、4-メチル-1-ペンテン系樹脂からなる絶縁性樹脂層は、外装体積層フィルムのバリアー層と熱融着性樹脂層との間全体に付設する方法や、リード端子のシール部周縁部のみに付設する方法などが考えられるが、いずれの方法でも構わない。

【0013】前記4-メチル-1-ペンテン系樹脂が、(a)4-メチル-1-ペンテン系重合体50重量%以上と、(b-1)ポリ1-ブテンおよび、または(b-2)ポリプロピレンのどちらか一方、または両方の合計が0~50重量%との組成物からなる場合には、外装体のシール温度を十分に高くできるので、さらに良い効果を得る事ができる。絶縁性樹脂層をリード端子シール部周縁部のみに付設する場合は、図4に示すように、リード端子長さ方向にシール箇所両端部を2mm程延長して付設することが好ましい。この絶縁性樹脂層を付設する時期としては、あらかじめリード端子に被覆しておいても、あるいはリード端子と外装体をシールする直前にリード端子周縁部に付設してから熱シールしても良い。リード端子シール部周縁部のみに付設する場合は、絶縁性

樹脂層の両側に、4-メチル-1-ペンテン系樹脂とリード端子との接着を促すための接着性樹脂(A)層、および4-メチル-1-ペンテン系樹脂と外装体熱融着性樹脂層との接着を促すための接着性樹脂(B)層が配設されることが好ましい。

【0014】このような構造をとるためには、接着性樹脂(A)層/絶縁性樹脂層/接着性樹脂(B)層の3層からなるシール材をリード端子周縁部に配置する方法が挙げられる。この3層構成のシール材は、ラミネート法、共押出し法など何れの方法でも作成可能である。この場合、接着性樹脂(A)層の膜厚は、リード端子の厚さの $1/4$ 以上2倍以下である事が好ましい。 $1/4$ より薄いとリード端子の周縁部を十分にシールする事が難しく、特に2倍より厚いとシール材のある場所と無い場所で大きな段差がつきすぎるので、外装体熱融着性樹脂層とのシール性に問題が生じる。

【0015】接着性樹脂(A)層は、4-メチル-1-ペンテン系重合体25~95重量%と、酸変性ポリオレフィン系樹脂5~75重量%の混合物であり、さらに詳しく説明するならば、該酸変性ポリオレフィン系樹脂が、プロピレン、ブテン-1、および4-メチル-1-ペンテンからなる群より選ばれた不飽和カルボン酸変性 α -オレフィン系重合体と、不飽和カルボン酸変性エチレン・ α -オレフィン共重合体の混合物である事が好ましい。また接着性樹脂(B)層は、4-メチル-1-ペンテン系重合体40~97.5重量%と、1-ブテン系重合体2.5~60重量%の混合物である事が好ましい。そして、ここで言う4-メチル-1-ペンテン系重合体には、4-メチル-1-ペンテン単独重合体、または4-メチル-1-ペンテン構成単位を85モル%以上含む共重合体、あるいはその変性物を用いることができる。

【0016】本発明の電池外装体のシール温度は140℃~240℃の範囲内から選ぶことが好ましい。より好ましくは160℃~210℃である。またシール方法としては、ヒートシール、インパルスシールなどの直接加熱、スピンウエルドなどの摩擦熱による方法、レーザー、赤外線、ホットジェットなどの外部加熱、高周波シール、超音波シールなどの内部加熱などを用いることができる。何れのシール方法を用いるかは、外装体を構成する熱融着性樹脂層の種類や構造を勘案して決定すれば良い。また接着剤、粘着剤などにより熱融着性樹脂層間を接合させて密閉することもできる。

【0017】本発明において、電池とは、電極積層体を外装体からなる袋の中に収容したものであり、非水系電池であり非水有機溶媒、または無溶媒の電池である。この電池の例として、リチウム電池、リチウムイオン電池などが挙げられる。電極積層体としては、一次電池および二次電池として種々の電極材料により電池を構成することができる。例えばリチウムイオン二次電池に用いる

電極材料として、正極材料にはコバルト酸リチウム、ニッケル酸リチウム、マンガン酸リチウムなどを、負極材料にはグラファイト、コークスなどの炭素材料、リチウム金属、リチウムと合金や金属間化合物を形成可能な材料を用いることができる。通常はこれら電極材料を粉末状にしてバインダーとともに塗工した形態や、焼結、圧延、蒸着、スパッタリングなどの方法で作成した連続体形態が利用できる。

【0018】また、電極間のイオン移動媒体としては、以下に記載の材料を用いることができる。各種の織布、不織布、紙、発泡体シート、またはポリエチレン、ポリプロピレン、あるいはそれらの組み合わせなどのポリオレフィン系微多孔質膜に代表される多孔性樹脂フィルム等に非水溶媒系電解液を含浸させた材料を用いることが可能である。または、酸化アルミニウム、酸化ケイ素、酸化チタン、酸化ジルコニウム、窒化チタン、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、ジルコン、ゼオライトなどに代表される無機物粒子、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、アラミド、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアセタール樹脂などに代表される有機物粒子などから構成される3次元網目空隙構造を有した絶縁性物質粒子集合体からなる多孔性の層や、それら多孔性の層が少なくとも1つの電極活物質層表面に直接形成されているものに非水溶媒系電解液を含浸させた材料を用いることが可能である。または、非水溶媒系電解液をポリマー材料に均一または不均一に含浸、膨潤させた材料、例えばポリアクリロニトリル、ポリエチレンオキサイド、ポリメタクリル酸メチル、ポリ(スチレン-アクリロニトリル)、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、ポリ(塩化ビニル-フッ化ビニリデン)、ポリフッ化ビニリデン、ポリ(フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン)などのポリフッ化ビニリデン系共重合体、アクリロニトリル-ブタジエンゴムなどに代表される分子量が大きいポリマーを非水溶媒系電解液で可塑化したもの等を用いることが可能である。または、イオン配位性のポリマー及び、またはセラミック材料に移動可能なイオンを含有させた材料、例えばポリエチレンオキサイド、ポリプロピレンオキサイドなどのポリエーテルや、ポリエステル、ポリイミン、ポリスルフィド、ポリエーテル架橋体、ポリエーテル誘導体などに代表されるドナー型の極性基を有する高分子と電解質塩との複合材料や、 $Li_{3+x}A_{1-x}B_xO_4$ ($A=P, V, As, B=Si, Ge, Ti$), $LiM_2(PO_4)_3$ ($M=Zr, Ge, Ti, Hf$), $Li_{1+x}M_xTi_{2-x}(PO_4)_3$ ($M=Al, Sc, Y, La$), $LiI, LiI \cdot Al_2O_3, Li_3PO_4 \cdot Li_2S \cdot SiS_2$ 系ガラス、 $Li_2S \cdot SiS_2$ 系ガラス、 $Li_xPO_yN_z$ で表されるオキシ窒化燐リチウムなどに代表される無機材料、あるいはそれらの複合体などを用いることが可能である。

【0019】電極積層体の構成として正極/イオン移動

媒体／負極からなる要素構造や、この要素構造を直列または並列積層した構造が利用できる。さらに電極から電流の取り出しを行うためのリード端子を電極に接続して電池構造を形成する。電極積層体の形状として、平板電極の単純積層状や、帯状電極の捲回積層状などが利用できる。このように本発明の電池構成要素、構造、形態は種々のものから用途、目的により選択することができる。これら電極積層体の構造に応じて外装体の構造を設計することができ、外装体内部に電極積層体を配置して、外装体の内外でリード端子それぞれがシールされた構造を形成して電池とすることができる。

【0020】

【発明の実施の形態】図を用いて、本発明の実施形態の例を示す。図1において、4-メチルー1-ペンテン系樹脂からなる絶縁性樹脂層を、外装体積層フィルム（X）のバリアー層と熱融着性樹脂層との間全体に付設して電池を作成した場合の、外装体から外部へ取り出した正極リード端子のシール部分の断面図を示す。

【0021】外装体積層フィルム（X）5は、外層である延伸ナイロンフィルム1と、バリアー層であるアルミニウム箔2と、絶縁性樹脂層である4-メチルー1-ペンテン系樹脂フィルム4と、熱融着性樹脂層であるポリプロピレンフィルム3との4層からなる。外装体積層フィルム（X）5は、ポリプロピレンフィルム3を内側にして、袋状になっており、電極積層体（図示せず）を収容している。リード端子8と、外装体積層フィルム（X）5との間に、接着強度を高める目的で酸変性ポリプロピレンフィルム7を挟んで熱シールする。リード端子8は、ポリプロピレンフィルム3とは直接に接さず、酸変性ポリプロピレンフィルム7を挟んだ状態で熱シールされる。このことによって、リード端子部分の接着力が強化され、液漏れ防止などに効力を発揮する。酸変性ポリプロピレンフィルム7は、少なくともシール面において、リード端子8を完全に覆うことで、接着力を発揮するもので、図1に示すように、リード端子8よりも幅広く配置することで十分な効力を発揮する。

【0022】また、図2において、絶縁性樹脂層をリード端子のシール部周縁部のみに付設して電池を作成した場合の、外装体から外部へ取り出した正極リード端子のシール部分の断面図を示す。外装体積層フィルム（Y）6は、外層である延伸ナイロンフィルム1と、バリアー層であるアルミニウム箔2と、熱融着性樹脂層であるポリプロピレンフィルム3との3層からなる。外装体積層フィルム（Y）6は、ポリプロピレンフィルム3を内側にして、袋状になっており、電極積層体（図示せず）を収容している。リード端子8と外装体積層フィルム（Y）6との間に、シール材（P）12を挟んで熱シールする。シール材（P）12は、接着性樹脂（B）層11と絶縁性樹脂層10と接着性樹脂（A）層9との3層構造からなり、接着性樹脂（B）層11とポリプロピレ

ンフィルム3、接着性樹脂（A）層9とリード端子8とが、それぞれ接するような向きで配置する。シール材（P）12は、少なくともシール面において、リード端子8を完全に覆うことで接着力を発揮するもので、図2に示すように、リード端子8よりも幅広く配置することで十分な効力を発揮する。

【0023】〈電極積層体の作成〉電極とそれを用いた電極積層体の作成方法について説明をする。〔正極〕活物質としてコバルト酸リチウム LiCoO_2 を100重量部、導電剤としてリン片状グラファイトとアセチレンブラックをそれぞれ2.5重量部、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン（PVdF）3.5重量部をN-メチルピロリドン（NMP）中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを正極集電体としての厚さ20 μm のアルミニウム箔の両面にダイコーターで塗工し、130℃で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。このとき、正極の活物質目付量は250 g/m^2 、活物質かさ密度は3.00 g/cm^3 になるようにして、両面正極シートを作成した。また同様に、アルミニウム箔の片面のみにダイコーターで塗工した片面正極シートも作成した。

【0024】〔負極〕活物質としてグラファイト化したメソフェーズピッチカーボンファバー（MCF）90重量部とリン片状グラファイト10重量部、バインダーとしてカルボキシメチルセルロースのアンモニウム塩1.4重量部とスチレン-ブタジエン共重合体ラテックス1.8重量部を精製水中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを負極集電体としての厚さ12 μm の銅箔の両面にダイコーターで塗工し、120℃で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形する。このとき、負極の活物質目付量は106 g/m^2 、活物質かさ密度は1.35 g/cm^3 になるようにして、両面負極シートを作成した。

【0025】〔電極積層体〕（1）得られた両面・片面両方の正極シートから、幅100mm、長さ100mmの極板（長さ方向の内10mmは活物質層の未塗工部）を切り出し、両面負極シートから、幅102mm、長さ102mmの極板（長さ方向の内10mmは活物質層の未塗工部）を切り出した。幅110mm、長さ190mmのポリエチレン微多孔膜セパレータを、長さ方向の中央部で折り曲げ、長さ方向の2辺を2mm幅でヒートシーラー（180℃）にて熱シールし、幅110mm、長さ95mmの長方形状で幅方向が1辺だけ開いているセパレータの袋を作成した。

【0026】この袋状セパレータの中に、活物質の未塗工部が外に出るように前記負極板を挿入し、正極活物質層と負極活物質層がセパレータを介して対向するように、かつ負極活物質層から正極活物質層がはみ出さないように重ねる。この時、最上層と最下層が片面正極（アルミニウム箔が外側）になるようにして、間に両面負極

6枚と両面正極5枚を交互に重ね、電極積層体を作成した。さらに、この電極積層体の負極活物質層未塗工部の集電体をまとめて、銅箔短冊（幅5mm、長さ30mm、厚さ150 μ m）のリード端子と一緒に超音波溶接し、同様に正極活物質層未塗工部の集電体をまとめて、アルミニウム箔短冊（幅5mm、長さ30mm、厚さ150 μ m）のリード端子と一緒に超音波溶接した（電極積層体1）。

【0027】（2）電極間のイオン移動媒体として、別の形態を用いて電極積層体を作成した。まず、エチレンカーボネートと γ -ブチロラクトンを1：2の体積比率で混合し、テトラフルオロホウ酸リチウムを1m ϕ 1／リットルになるように溶解させた。この溶媒にポリアクリロニトリルが15m ϕ 1%となるように、ポリアクリロニトリル粉末（平均分子量150000）を加え、100℃に昇温し、約30分間加熱攪拌して、粘性の高い溶液を作成した。これを放冷することによってゲル状の電解質を得た。次に、電極積層体の作成（1）と同サイズの正極板、負極板にゲル状の電解質を塗布した後、ずれないように複数枚を重ね合わせ、（1）と同様な電極積層体を作成した。

【0028】さらに、この電極積層体の負極活物質層未塗工部の集電体をまとめて、銅箔短冊（幅5mm、長さ30mm、厚さ150 μ m）のリード端子と一緒に超音波溶接し、同様に正極活物質層未塗工部の集電体をまとめて、アルミニウム箔短冊（幅5mm、長さ30mm、厚さ150 μ m）のリード端子と一緒に超音波溶接した（電極積層体2）。

【0029】〈シール材の作成〉次に、絶縁性樹脂層をリード端子のシール部周縁部のみに付設する場合に用いる、シール材の作り方について説明をする。

【0030】接着性樹脂（A）として、4-メチルー1-ペンテン単重合体50重量%と、不飽和カルボン酸変性プロピレン重合体25重量%と、不飽和カルボン酸変性エチレン・プロピレン共重合体25重量%の混合物を用意した。同様に接着性樹脂（B）として、4-メチルー1-ペンテン単重合体50重量%と、1-ブテン系重合体50重量%の混合物を用意した。これに加えて絶縁性樹脂として、4-メチルー1-ペンテン単重合体を用意し、接着性樹脂は250℃、絶縁性樹脂は280℃の成形温度にて、3層共押し出し成形機を使用して接着性樹脂（A）層／絶縁性樹脂層／接着性樹脂（B）層の3層構成からなる積層フィルムのシール材を作成した。

【0031】接着性樹脂（A）層が40 μ m、絶縁性樹脂層と接着性樹脂（B）層がそれぞれ20 μ mで、総厚さが80 μ mである積層フィルムを、シール材（P）とし、同様に作成した接着性樹脂（A）層と絶縁性樹脂層がそれぞれ20 μ m、接着性樹脂（B）層が40 μ mで、総厚さが80 μ mである積層フィルムを、シール

材（Q）とする。

【0032】

【実施例1】外装体として、延伸ナイロンフィルム（膜厚15 μ m）、アルミニウム箔（膜厚40 μ m）、4-メチルー1-ペンテン系樹脂フィルム〔三井化学社製、オピュランX44B（膜厚25 μ m）〕、ポリプロピレンフィルム（膜厚20 μ m）を順次積層した積層フィルム（X）（ドライラミネート法）を作成した。この積層フィルムから幅120mm、長さ240mmの長方形状片を切り出し、ポリプロピレン層が内側になるように長さ方向の中央部を折り曲げて、幅120mm、長さ120mmの2枚重ねの積層フィルム片を作成した。そして得られたフィルム片の長さ方向の一辺を5mm幅のヒートシーラー（180℃）にて熱シールし、幅と長さ方向が一辺ずつ開いている外装体を作成した。

【0033】この外装体に、別途用意された電極積層体1をリード端子が外装体の幅にあたる辺より外部に出るように挿入し、リード端子と外装体間のシール部に酸変性ポリプロピレンフィルム（膜厚80 μ m、幅10mm、長さ10mm）の長さ方向が2mmほど外装体より出るように配置して、その上から外装体と一緒に5mm幅のヒートシーラー（200℃）で熱シールしたものを20個用意した。ここでまず、正極・負極のリード端子間の絶縁抵抗値を測定した。この絶縁抵抗値が20M Ω 以上あったものだけを合格と判断して、次の工程へと進めた。

【0034】電極積層体を挿入した外装体のシールしていない残りの一辺から、電解液を20g注入した後、減圧して真空中で電解液の含浸を充分に行い、その後炭酸ガスを導入してから外装体の内側どうしを5mm幅のヒートシーラー（180℃）にて熱シールし、リチウムイオン二次電池を作成した。なお電解液としては、エチレンカーボネートと γ -ブチロラクトンを1：2の体積比率で混合し、テトラフルオロホウ酸リチウムを1m ϕ 1／リットルになるように溶解したものを使用した。

【0035】このようにして作製した電池を以下の条件で評価した。電池重量を測定した後に、電池を25℃雰囲気下に置いて1.7Aの電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、さらに4.2Vを保持するようにして電流値を1.7Aから絞り始めるという方法で、合計6時間電池作製後の最初の充電を行った。そして、25℃雰囲気下で2週間放置した後、電池重量を測定し、さらに85℃雰囲気下に置いて1週間放置した後、もう一度電池重量を測定した。この評価結果を、表1に示した。測定した20個はすべて十分な端子間絶縁抵抗を有し、充電にも問題がなく、その後の長時間保存でも重量変化が測定されず、シール部からの電解液漏れはなかった。

【0036】

【実施例2】延伸ナイロンフィルム（膜厚15 μ m）、アルミニウム箔（膜厚40 μ m）、ポリプロピレンフィ

ルム（膜厚 $20\mu\text{m}$ ）を順次積層した積層フィルム（Y）をドライラミネート法で作成した。この積層フィルムから幅 120mm 、長さ 240mm の長形状片を切り出し、ポリプロピレン層が内側になるように長さ方向の中央部を折り曲げて、幅 120mm 、長さ 120mm の2枚重ねの積層フィルム片を作成した。そして得られたフィルム片の長さ方向の一边を 5mm 幅のヒートシーラー（ 180°C ）にて熱シールし、幅と長さ方向が一边ずつ開いている外装体を作成した。

【0037】この外装体に、別途用意された電極積層体1をリード端子が外装体の幅にあたる辺より外部に出るように挿入し、リード端子と外装体間のシール部に、別途用意された接着性樹脂（A）層／絶縁性樹脂層／接着性樹脂（B）層の積層フィルムからなるシール材（P）（膜厚 $80\mu\text{m}$ 、幅 10mm 、長さ 10mm ）を切り出して、接着性樹脂（A）層がリード端子側に、接着性樹脂（B）層が外装体側になるように、かつ長さ方向が 2mm ほど外装体より出るように配置し、その上から外装体と一緒に 5mm 幅のヒートシーラー（ 200°C ）で熱シールした。その後は、実施例1と同様にして、リチウムイオン二次電池を作成し評価した。この評価結果を、表1に示した。測定した20個はすべて十分な端子間絶縁抵抗を有し、充電にも問題がなく、その後の長時間保存でも重量変化が測定されず、シール部からの電解液漏れはなかった。

【0038】

【実施例3】〔電極積層体〕作成法（2）で作成したゲル状電解質を用いた電極積層体2を使用したこと以外は、実施例2と同様にリチウムイオン二次電池を20個作成した。その後、作成した電池を実施例2と同様に評価した。この評価結果を、表1に示した。測定した20個はすべて十分な端子間絶縁抵抗を有し、充電にも問題がなく、その後の長時間保存でも重量変化が測定されなかった。

【0039】

【実施例4】リード端子と外装体間のシール部にシール材（P）を用いる代わりに、別途用意されたシール材（Q）を、接着性樹脂（A）層がリード端子側に、接着性樹脂（B）層が外装体側になるように配置し、ヒート

シーラー（ 180°C ）で熱シールしたこと以外は、実施例2と同様にしてリチウムイオン二次電池を20個作成した。その後、作成した電池を実施例1と同様に評価した。この評価結果を、表1に示した。

【0040】

【比較例1】リード端子と外装体間のシール部に接着性樹脂（A）層／絶縁性樹脂層／接着性樹脂（B）層の積層フィルムからなるシール材（P）を用いる代わりに、アイオノマー樹脂製フィルム（膜厚 $80\mu\text{m}$ ）を使用したこと以外は、実施例2と同様にしてリチウムイオン二次電池を作成した。その後、作成した電池を実施例1と同様に評価した。この評価結果を、表1に示した。比較例1においては、測定した20個中12個しか十分な端子間絶縁が得られず、また、その12個も、高温での保存試験で重量が減少した。

【0041】

【比較例2】リード端子と外装体間のシール部にシール材（P）を用いる代わりに、4-メチルー1-ペンテン系樹脂フィルム（膜厚 $80\mu\text{m}$ ）を使用したこと以外は、実施例2と同様にしてリチウムイオン二次電池を作成した。その後、作成した電池を実施例1と同様に評価した。この評価結果を、表1に示した。比較例2においては、端子間絶縁は保っていたが、リード端子との接着性が悪く直ぐに開口してしまったため、重量変化については評価不能であった。

【0042】

【比較例3】リード端子と外装体間のシール部にシール材（P）を用いる代わりに、別途用意されたシール材（Q）を、接着性樹脂（B）層がリード端子側に、接着性樹脂（A）層が外装体側になるように配置し、ヒートシーラー（ 180°C ）で熱シールしたこと以外は、実施例2と同様にしてリチウムイオン二次電池を20個作成した。その後、作成した電池を実施例1と同様に評価した。この評価結果を、表1に示した。比較例3の電池は、十分な端子間絶縁抵抗を得て、リード端子とも接着しているように見えたが、長時間保存によって重量が減少した。

【0043】

【表1】

	リード端子間の 絶縁抵抗が 20 MΩ以上 あった 電池の個数	電池作成時の 平均電池重量	25℃雰囲気 2週間放置の 評価前後で 変化した 平均電池重量	85℃雰囲気 1週間放置の 評価前後で 変化した 平均電池重量
実施例 1	20個	79.8 g	0.0 g	0.0 g
実施例 2	20個	80.2 g	0.0 g	0.0 g
実施例 3	20個	79.6 g	0.0 g	0.0 g
実施例 4	20個	80.0 g	-0.4 g	-3.2 g
比較例 1	12個	79.6 g	0.0 g	-1.3 g
比較例 2	20個	79.9 g	-8.3 g シール部開口	評価不能
比較例 3	20個	80.1 g	-2.7 g	-5.1 g

【0044】

【発明の効果】本発明によれば、金属箔と熱融着性樹脂層からなる積層フィルムを外装体に用いた軽量・薄肉の電池において、電極リード端子部の端子間短絡を大幅に低減させ、且つシール性を高めて、電池の信頼性・安定性を大幅に向上させる事ができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例1における、正極リード端子シール部分の熱シール前の断面の一例を示す。

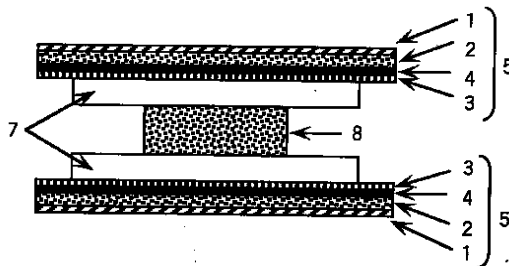
【図2】本発明の実施例2における、正極リード端子シール部分の熱シール前の断面の一例を示す。

【図3】本発明の実施例2における電池の透視図である。

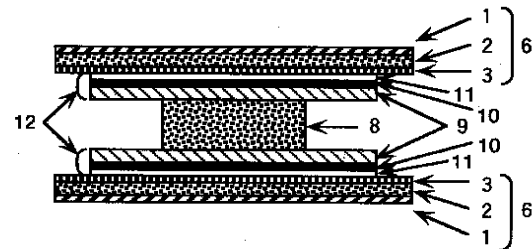
【符号の説明】

- 1 延伸ナイロンフィルム
- 2 アルミニウム箔
- 3 ポリプロピレンフィルム
- 4 4-メチル-1-ペンテン系樹脂フィルム
- 5 積層フィルム(X)
- 6 積層フィルム(Y)
- 7 酸変性ポリプロピレンフィルム
- 8 正極リード端子
- 9 接着性樹脂(A)層
- 10 絶縁性樹脂層(4-メチル-1-ペンテン系樹脂フィルム)
- 11 接着性樹脂(B)層
- 12 シール材(P)

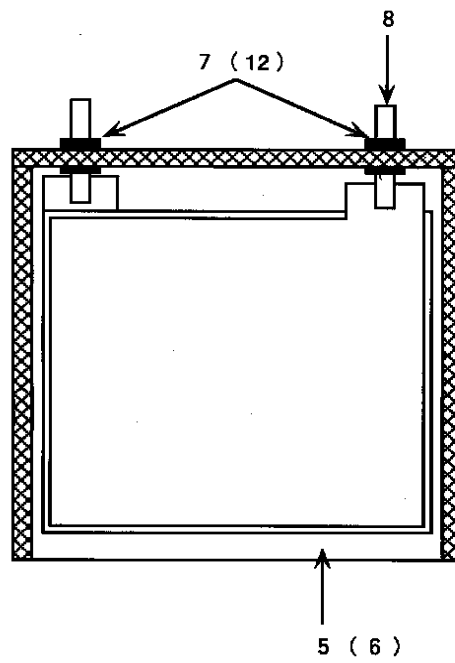
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H011 AA03 AA17 CC02 CC10 FF04
GG09 HH02 HH13
5H029 AJ12 AJ15 AK03 AL07 AL08
AL12 AM00 AM03 AM04 AM05
AM16 BJ04 DJ02 DJ03 DJ05
EJ11